

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the application of:

Akira KUBOTA et al.

Serial Number: Not Yet Assigned

Examiner: Not Yet Assigned

Filed: December 5, 2001

Art Unit: Not Yet Assigned

For: POLYESTER FILM AND MAGNETIC RECORDING MEDIUM USING THE SAME

CLAIM TO PRIORITY UNDER 35 U.S.C. § 119

Assistant Commissioner
for Patents
Washington, D.C. 20231

December 5, 2001

Sir:

The benefit of the filing date of each of the following prior foreign applications is hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. § 119 is hereby claimed:

Japanese Patent Application No.2000-378814, filed December 13, 2000

Japanese Patent Application No.2000-378815, filed December 13, 2000

In support of this claim, the requisite certified copy of each of said original foreign applications is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the applicant has complied with the requirements of 35 U.S.C. § 119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these documents.

In the event any fees are required, please charge our Deposit Account No. 111833.

Respectfully submitted,

KUBOVCIK & KUBOVCIK



Keiko Tanaka Kubovcik
Reg. No. 40,428

Atty. Case No. TOR-034
The Farragut Building
Suite 710
900 17th Street, N.W.
Washington, D.C. 20006
Tel: (202) 887-9023
Fax: (202) 887-9093

KTK/cfm

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年12月13日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-378814

出 願 人

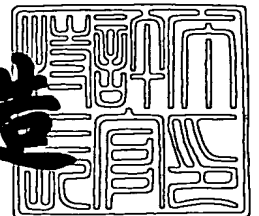
Applicant(s):

東レ株式会社

2001年 7月27日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3065031

【書類名】 特許願

【整理番号】 21E23830-A

【提出日】 平成12年12月13日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B32B 27/36

【発明者】

 【住所又は居所】 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

 【氏名】 窪田 啓

【発明者】

 【住所又は居所】 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

 【氏名】 江頭 賢一

【発明者】

 【住所又は居所】 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

 【氏名】 恒川 哲也

【特許出願人】

 【識別番号】 000003159

 【氏名又は名称】 東レ株式会社

 【代表者】 平井 克彦

 【電話番号】 03-3245-5648

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 005186

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 磁気記録媒体用ポリエステルフィルム、その製造方法及び磁気記録媒体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ポリエステルとポリイミドからなる基層部（A 層）の少なくとも一方に積層部（B 層）が積層されてなる、少なくとも 2 層以上のフィルム層を有する積層ポリエステルフィルムであって、B 層側の表面粗さ $R a_{(B)}$ 、B 層と反対側の表面粗さ $R a_{(NB)}$ 、表裏のフィルム表面の表面粗さの差 $R a_{(B)} - R a_{(NB)}$ 、B 層と反対面側のフィルム表面の粗大突起数 $H 1$ 、B 層と反対面側のフィルム表面の粗大突起数 $H 2$ 、および、A 層中の粒子の実体平均粒径 $D v$ と粒径 D との比 $D v / D$ が、以下の関係を満たすことを特徴とする磁気記録媒体用ポリエステルフィルム。

$$3 \leq R a_{(B)} \text{ (nm)} \leq 15$$

$$0.5 \leq R a_{(NB)} \text{ (nm)} \leq 10$$

$$1 \leq R a_{(B)} - R a_{(NB)} \text{ (nm)} \leq 7$$

$$0 \leq H 1 \text{ (個/100 cm}^2\text{)} \leq 100$$

$$0 \leq H 2 \text{ (個/100 cm}^2\text{)} \leq 10$$

$$1 \leq D v / D \leq 3$$

【請求項 2】 A 層が平均粒径 $0.001 \sim 0.5 \mu m$ の不活性粒子を $0.001 \sim 1$ 重量% 含有し、B 層が平均粒径 $0.01 \sim 1.0 \mu m$ の不活性粒子を $0.001 \sim 3$ 重量% 含有する請求項 1 に記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルム。

【請求項 3】 A 層のポリイミドがポリエーテルイミドである請求項 1 または 2 に記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルム。

【請求項 4】 A 層のポリエステルがエチレンテレフタレート単位を主たる成分とするものである請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルム。

【請求項 5】 A 層のポリマーの補外ガラス転移開始温度 ($T g_{onset}$) が $90 \sim 150^\circ C$ である請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の磁気記録媒体用ポリエステ

ルフィルム。

【請求項 6】 ポリイミドが A 層中に 5 ～ 3 0 重量%含まれる請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルム。

【請求項 7】 フィルムの長手方向の 1 0 0 ℃ 3 0 分における熱収縮率が 1 . 2 %以下であり、8 0 ℃ 3 0 分における熱収縮率が 0 . 3 %以下であり、幅方向の 1 0 0 ℃ 3 0 分における熱収縮率が 0 . 5 %以下であり、8 0 ℃ 3 0 分における熱収縮率が 0 . 1 %以下であり、かつ、6 0 ℃、8 0 % R H の条件下、長手方向に 2 6 M P a の荷重をかけた状態で、7 2 時間放置した場合における幅方向の寸法変化率が - 0 . 4 ～ 0 %の範囲である請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルム。

【請求項 8】 フィルム全厚みが 3 ～ 8 μ m であり、かつ、長手方向の弾性率が 5 . 5 G P a 以上、長手方向と幅方向の弾性率の和が 1 0 ～ 2 5 G P a である請求項 1 ～ 7 のいずれかに記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルム。

【請求項 9】 押出機よりポリエステルとポリイミドのポリマーアロイを 1 . 2 μ m カット以下の繊維焼結ステンレス金属フィルターによって濾過した後に口金から熔融押出し未延伸フィルムを作成した後、フィルム長手方向に $T_g + 1 0$ ℃ ～ $T_g + 3 0$ ℃ の延伸温度で 2 . 5 倍 ～ 4 . 0 倍の延伸倍率、5 万 ～ 2 0 万 % / 分の延伸速度で 2 段階以上で延伸し、次に幅方向に $T_g + 1 0$ ℃ ～ $T_g + 5 0$ ℃ の延伸温度で 3 . 0 倍 ～ 4 . 5 倍の倍率、2 0 0 0 ～ 1 0 0 0 0 % / 分の延伸速度で延伸し、さらに、温度 $T_g + 3 0$ ℃ ～ $T_g + 5 0$ ℃、倍率 1 . 2 倍 ～ 1 . 8 倍での再縦延伸、及び、温度 $T_g + 8 0$ ℃ ～ $T_g + 1 1 0$ ℃、倍率 1 . 2 倍 ～ 2 . 0 倍での再横延伸をした後、 $T_g + 1 0 0$ ℃ ～ $T_g + 1 2 5$ ℃ で 0 . 2 ～ 1 0 秒熱処理することを特徴とする磁気記録媒体用ポリエステルフィルムの製造方法。

【請求項 1 0】 請求項 1 ～ 8 のいずれかに記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルムの少なくとも片面に磁性層を設けてなる磁気記録媒体。

【請求項 1 1】 請求項 1 0 に記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルムの少なくとも片面に強磁性金属薄膜を形成してなる磁気記録媒体。

【請求項 1 2】 請求項 1 0 に記載の磁気記録媒体用ポリエステルフィルムの

少なくとも片面に、強磁性金属微粉末を結合剤中に分散してなる磁性層を形成してなる磁気記録媒体。

【請求項 1 3】 請求項 1 0 ～ 1 2 のいずれかに記載の磁気記録媒体からなるデジタル記録方式のカセット磁気テープ。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポリエステルフィルムの品質、特に熱的寸法安定性と表面特性を大幅に向上させた磁気記録媒体用 2 軸配向ポリエステルフィルムに関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

二軸配向ポリエステルフィルムはその優れた熱特性、寸法安定性、機械特性および表面形態の制御し易さから各種用途に使用されており、特に磁気テープ用などのベースフィルムとしての有用性は周知である。近年、磁気テープは機材の軽量化、小型化と長時間記録化のために高密度記録化が要求されている。高密度記録化のためには、記録波長を短くし、記録信号を小型化することが有効である。しかしながら、記録信号を小型化すると、磁気テープの走行時における熱や、またテープ保存時の熱変形により、記録トラックのずれを起こしやすくなる問題点がある。したがって、テープ使用環境での熱寸法安定性および保存安定性といった特性の改善に対する要求がますます強くなっている。

【 0 0 0 3 】

また、記録信号を小型化するためには、磁性層の厚さを非常に薄くする必要がある、これに伴い、ベースフィルムの表面が磁気テープの表面形状に及ぼす影響が大きくなってきている。このため、ベースフィルムとしては、突起高さを低く、表面を平滑とすることや、表面粗さを精密にコントロールする必要性が高まっており、これらの要求を満足する表面を有するフィルムの開発が切望されている。

【 0 0 0 4 】

上記の寸法安定性の要求に応え得るベースフィルムとして、従来からアラミド

フィルムが、強度、寸法安定性の点から使用されている。アラミドフィルムは高価格であるためコストの点では不利であり、また、従来のポリエチレンテレフタレートフィルムの様に溶融押出による成型が不可能であるため生産効率も低いという点でも不利であるが、代替品が無いため使用されているのが現状である。

【 0 0 0 5 】

一方、高い生産性を有する2軸配向ポリエステルフィルムの寸法安定性を改善する技術としては、ポリエチレンテレフタレートとポリエーテルイミドからなる2軸配向ポリエステルフィルム（例えば、特開平12-141475号公報）が知られている。

【 0 0 0 6 】

しかし、上記の2軸配向ポリエステルフィルムも、従来のポリエチレンテレフタレートなどに代表されるポリエステルとは溶融粘度が大きく異なるなどの要因により、従来の製膜手法を用いた場合、添加粒子の周りにボイドを形成しやすいなどの問題があり、高密度磁気記録媒体として好ましい表面形態に精密にコントロールすることが困難であるという問題点を抱えているのが現状である。

【 0 0 0 7 】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、寸法安定性に優れ、かつ、粒子周りのボイドが小さく、表面粗さなどの表面形態が精密にコントロールされ、特に磁気記録媒体用ベースフィルムとして使用したときにトラックずれやドロップアウトが少なく良好な電磁変換特性を示す高密度磁気記録テープを製造でき、磁気記録媒体用ベースフィルム用として好適な2軸配向ポリエステルフィルムを提供することにある。

【 0 0 0 8 】

【課題を解決するための手段】

本発明は、ポリエステルとポリイミドからなる基層部（A層）の少なくとも一方に積層部（B層）が積層されてなる、少なくとも2層以上のフィルム層を有する積層ポリエステルフィルムであって、B層側の表面粗さ $Ra_{(B)}$ 、B層と反対側の表面粗さ $Ra_{(NB)}$ 、表裏のフィルム表面の表面粗さの差 $Ra_{(B)} - Ra_{(NB)}$ 、B層と反対面側のフィルム表面の粗大突起数 $H1$ 、B層と反対面側のフィル

ム表面の粗大突起数 H_2 、および、A層中の粒子まわりのボイドの大きさ D_v と粒径 D との比 D_v/D が、以下の関係を満たす磁気記録媒体用ポリエステルフィルムである。

【0009】

$$3 \leq R a_{(B)} \text{ (nm)} \leq 15$$

$$0.5 \leq R a_{(NB)} \text{ (nm)} \leq 10$$

$$1 \leq R a_{(B)} - R a_{(NB)} \text{ (nm)} \leq 7$$

$$0 \leq H_1 \text{ (個/100 cm}^2\text{)} \leq 100$$

$$0 \leq H_2 \text{ (個/100 cm}^2\text{)} \leq 10$$

$$1 \leq D_v/D \leq 3$$

【0010】

【発明の実施の形態】

本発明のフィルムは基層部（A層という）の少なくとも一方に積層部（B層という）が積層されてなる、少なくとも2層以上のフィルム層を有する積層ポリエステルフィルムである。1層のみからなるフィルムである場合は本発明の特性を満足させることができない。A層は磁気記録媒体用として用いる際、一般的にフィルム中で最も厚みの厚い層であり、主に強度、寸法安定性の保持などの働きをする層である。また、積層部であるB層はA層よりもフィルム層の厚みが薄い層であり、主に磁気テープとした際のテープ走行性や走行耐久性を得る働きをする層で、比較的粗い表面とすることで、良好な走行性を得ることもできる。

【0011】

本発明の積層ポリエステルフィルムにあっては、これを構成するA層またはB層の少なくとも1層が2軸に配向している必要がある。全ての層が無配向や一軸配向では本発明の特性を満足させることができない。

【0012】

本発明のA層はポリエステルとポリイミドを必須成分とするポリマーアロイから構成される。

【0013】

本発明でいうポリマーアロイとは、高分子多成分系のことであり、共重合によ

るブロックコポリマーであってもよいし、混合などによるポリマーブレンドであってもよい。ただし、ポリスチレン粒子やポリメタクリル酸メチル粒子などの高分子粒子を外部添加した場合を除く。

【0014】

本発明で用いるポリエステルは、芳香族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸または脂肪族ジカルボン酸などの酸成分とジオール成分から構成されるポリエステル単位を70重量%以上含有するポリマーである。

【0015】

芳香族ジカルボン酸としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸等を用いることができる。脂環族ジカルボン酸としては、例えば、シクロヘキサンジカルボン酸等を用いることができる。脂肪族ジカルボン酸としては、例えば、アジピン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸等を用いることができる。なかでも好ましくは、テレフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸等を用いることができ、特に好ましくは、テレフタル酸を用いることができる。これらの酸成分は一種のみを用いてもよく、二種以上を併用してもよい。

【0016】

また、ジオール成分としては、例えば、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、2,2'-ビス(4'- β -ヒドロキシエトキシフェニル)プロパン等を用いることができ、なかでも好ましくは、エチレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール等を用いることができ、特に好ましくは、エチレングリコールを用いることができる。これらのジオール成分は一種のみを用いてもよく、二種以上を併用してもよい。

【0017】

本発明で用いるポリエステルとしては、ポリエチレンテレフタレート(PET)およびポリ(エチレン-2,6-ナフタレンジカルボキシレート)(PEN)

が特に好ましく例示され、溶融成形性の観点から、最も好ましくは、ポリエチレンテレフタレート（PET）が挙げられる。

【0018】

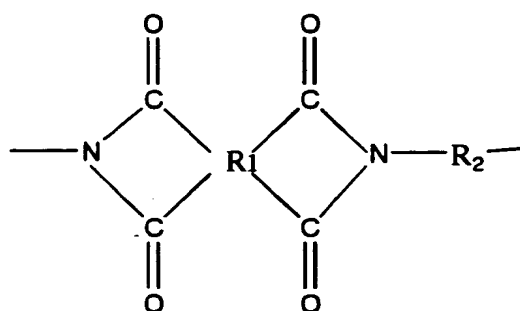
また、ポリエステルには、トリメリット酸、ピロメリット酸、グリセロール、ペンタエリスリトール、2，4－ジオキシ安息香酸等の多官能化合物、ラウリルアルコール、イソシアン酸フェニル等の単官能化合物、p－ヒドロキシ安息香酸、m－ヒドロキシ安息香酸、2，6－ヒドロキシナフトエ酸などの芳香族ヒドロキシカルボン酸あるいはp－アミノフェノール、p－アミノ安息香酸などを本発明の効果が損なわれない程度の量であればさらに共重合してもよい。

【0019】

本発明で用いるもう一つのポリマーのポリイミドは、ポリエステルと良好な親和性を有し、溶融成形性であれば特に限定されないが、例えば、下記一般式で示されるような構造単位を含有するものが好ましい。なお、ここでいう良好な親和性（相溶性）を有するとは、例えば、ポリマー1とポリマー2からなるポリマーアロイを用い、未延伸または2軸延伸フィルムを作成し、該フィルム断面を透過型電子顕微鏡で3万～50万倍の倍率で観察した場合、外部添加粒子などの添加物に起因しない直径200nm以上の構造（例えば、分散不良のポリマードメインなど）が観察されないことをいう。ただし、ポリマー1とポリマー2の親和性を判定する方法は特にこれに限定されるものではなく、また、必要に応じて、温度変調型DSC（MDSC）によって単一のガラス転移点が観察されることによって良好な親和性があると判定してもよい。

【0020】

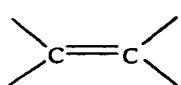
【化1】



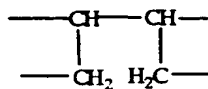
ただし、式中の R_1 は、

【0021】

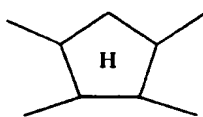
【化2】



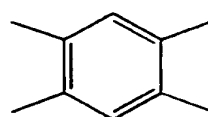
(a)



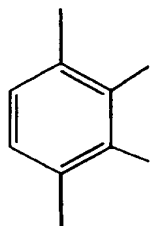
(b)



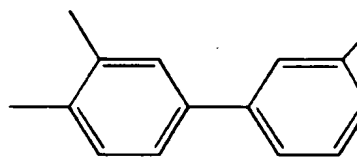
(c)



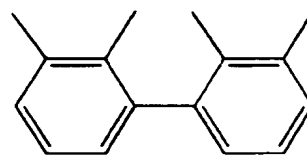
(d)



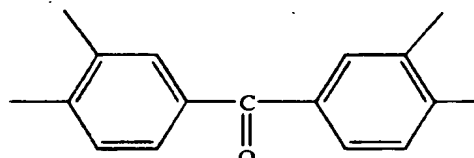
(e)



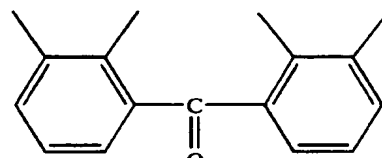
(f)



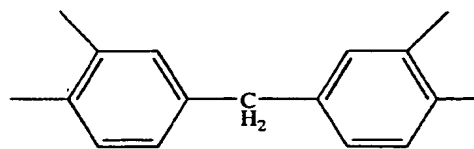
(g)



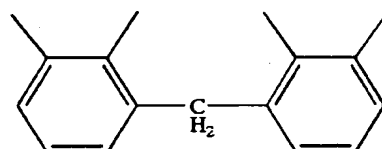
(h)



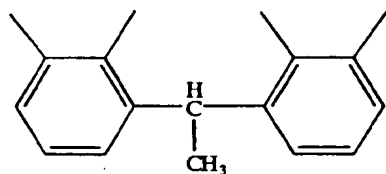
(i)



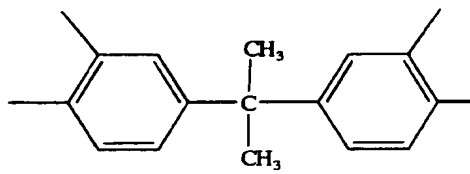
(j)



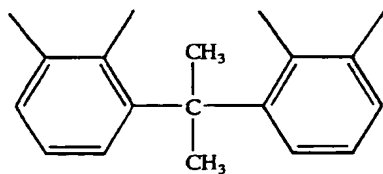
(k)



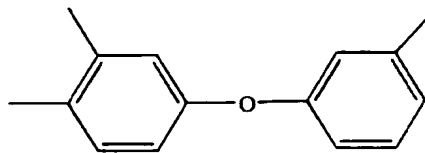
(l)



(m)



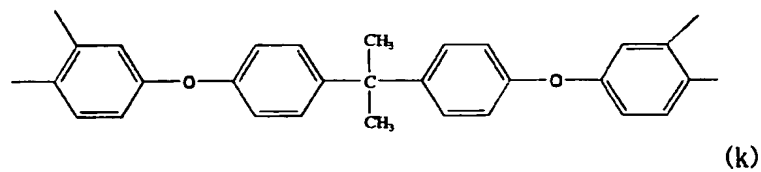
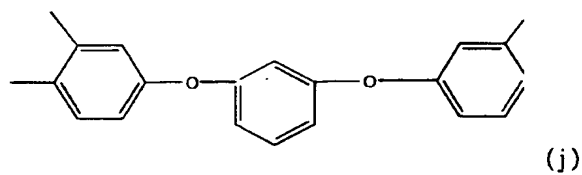
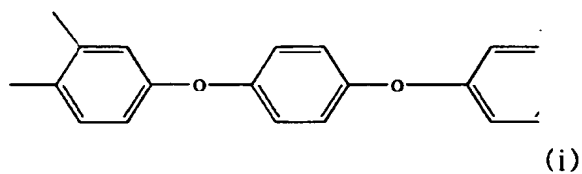
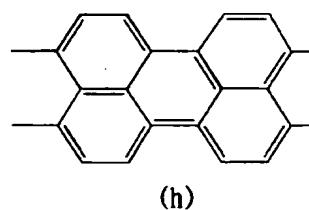
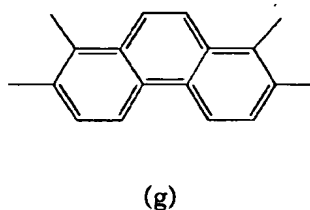
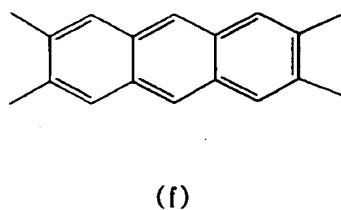
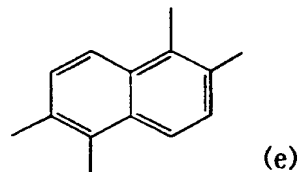
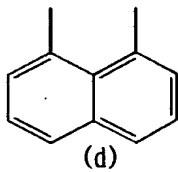
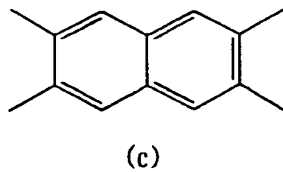
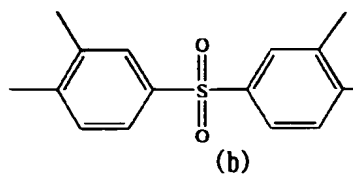
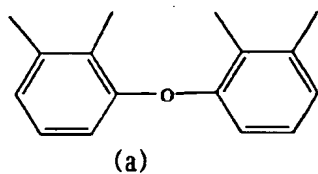
(n)



(p)

【0022】

【化 3】

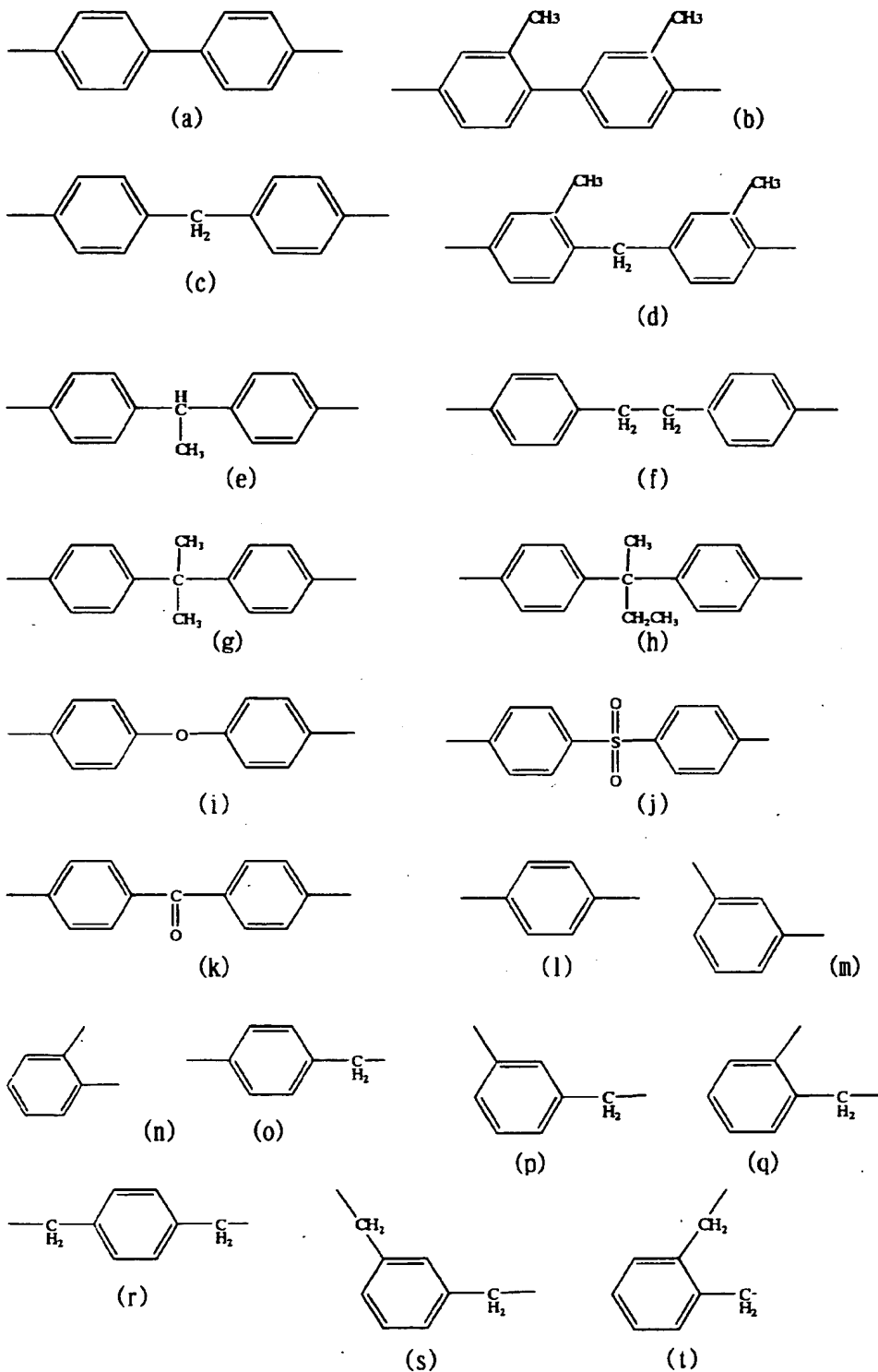


などの脂肪族炭化水素基、脂環族炭化水素基、芳香族炭化水素基から選ばれた一種もしくは二種以上の基を表して、

また、式中の R_2 は、

【0023】

【化4】



などの脂肪族炭化水素基、脂環族炭化水素基、芳香族炭化水素基から選ばれた一種もしくは二種以上の基を表す。

【 0 0 2 4 】

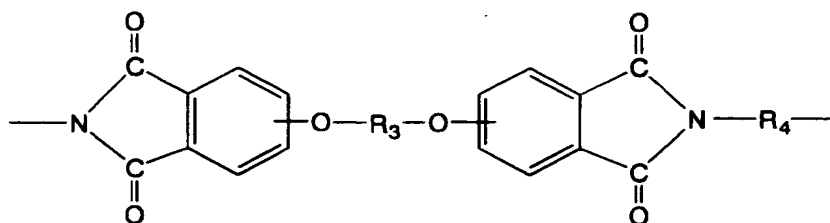
かかるポリイミドは、テトラカルボン酸および／またはその酸無水物と、脂肪族一級モノアミン、芳香族一級モノアミン、脂肪族一級ジアミンおよび芳香族一級ジアミンよりなる群から選ばれる一種もしくは二種以上の化合物を脱水縮合することにより得ることができる。

【 0 0 2 5 】

ポリエステルとの溶融成形性や取り扱い性、表面突起の形成性などの点から、下記一般式で示されるような、ポリイミド構成成分にエーテル結合を含有するポリエーテルイミドが特に好ましい。

【 0 0 2 6 】

【 化 5 】

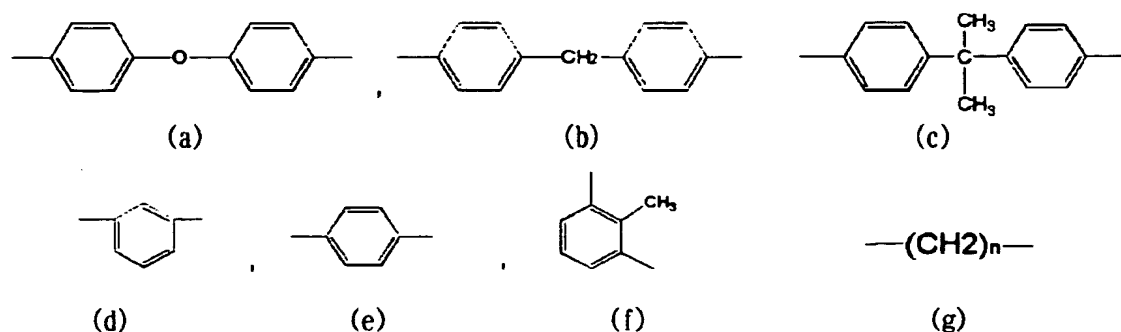


(ただし、上記式中 R_3 は、6～30個の炭素原子を有する2価の芳香族または脂肪族残基、 R_4 は6～30個の炭素原子を有する2価の芳香族残基、2～20個の炭素原子を有するアルキレン基、2～20個の炭素原子を有するシクロアルキレン基、および2～8個の炭素原子を有するアルキレン基で連鎖停止されたポリオルガノシロキサン基からなる群より選択された2価の有機基である。)

【 0 0 2 7 】

上記 R_3 、 R_4 としては、例えば、下記式群に示される芳香族残基

【化 6】



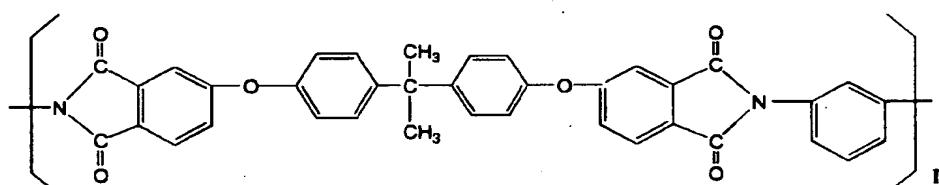
を挙げることができる。

【0028】

本発明では、ポリエステル（ポリマー 1）との親和性、コスト、溶融成形性等の観点から、2，2-ビス〔4-（2，3-ジカルボキシフェノキシ）フェニル〕プロパン二無水物と m-フェニレンジアミン、または p-フェニレンジアミンとの縮合物である、下記式で示される繰り返し単位を有するポリマーが好ましい。

【0029】

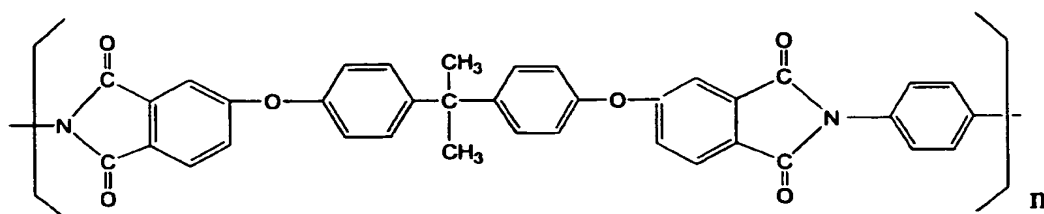
【化 7】



または

【0030】

【化 8】



(n は2以上の整数、好ましくは20～50の整数)

このポリエーテルイミドは、“ウルテム”（登録商標）の商品名で、ジーイープラスチック社より入手可能である。

【0031】

本発明のA層を構成するポリマーアロイには、分散径を制御するために、必要に応じて、相溶化剤を併用してもよい。この場合、相溶化剤の種類は、ポリマーの種類によって異なるが、添加量は0.01～10重量%が好ましい。

【0032】

本発明において、ポリイミドをポリエステルに添加する時期は、ポリエステルの重合前、例えば、エステル化反応前に添加してもよいし、重合後に添加してもよい。また、溶融押出前に、ポリエステルとポリイミドを混合してペレタイズしてもよい。また、ペレタイズの際に、一旦、ポリイミド（ポリマー2）を高濃度（例えば、35～65重量%、より好ましくは40～60重量%）含有するマスターペレットを作成してから、さらにポリエステルで希釈して、所定の濃度に調整する方法を用いると、ポリマー同士の分散性が向上し、本発明のポリマーアロイとしてより好ましい分散状態を示すことがある。

【0033】

また本発明のA層を構成するポリマーアロイをより好ましい分散状態に調整する他の方法としては、例えば、タンデム押出機を用いて混合する方法、2種類以上のポリエステルを用いてポリエーテルイミドを微分散させる方法、粉碎器でポリイミドを粉末状に粉碎した後に混合する方法、両者を溶媒に溶解し共沈させることにより混合する方法、一方を溶媒に溶かした溶液状とした後に他方に混合する方法なども挙げられるが、この限りではない。

【 0 0 3 4 】

本発明のA層以外のフィルム層に用いるポリマー種は特に限定されないが、A層に用いたものと同じポリエステル、またはA層に用いたものと同じポリエステルとポリイミドからなるポリマーアロイを用いた場合、基層部と積層部に溶融粘度の差が生じにくいため、積層斑や口金すじなど生産工程でのトラブルが生じにくいため好ましい。

【 0 0 3 5 】

本発明の積層ポリエステルフィルムのA層には、特に限定されないが、磁気記録媒体としたときの、磁気テープの走行耐久性や、磁気ヘッドとの走行性を良好させる目的で、不活性粒子を含有させてもよい。なお、本発明で言う不活性粒子とは、平均粒径10nm～1μm程度の無機または有機の粒子で、本発明のポリマー中で化学反応を起こしたり、電磁気的影響により磁気記録に悪影響を与えないものを言う。不活性粒子としては、酸化チタン、炭酸カルシウム、カオリン、タルク、湿式または乾式シリカ、コロイド状シリカ、リン酸カルシウム、硫酸バリウム、アルミナおよびジルコニア等の無機粒子、アクリル酸類、スチレン、シリコーン、イミド等を構成成分とする有機粒子、ポリエステル重合反応時に添加する触媒等によって析出する粒子（いわゆる内部粒子）や、界面活性剤などがある。

【 0 0 3 6 】

本発明のA層に不活性粒子を含有させる場合、平均粒径は0.001～0.5μmが好ましく、より好ましくは0.01～0.3μmである。不活性粒子の平均粒径が0.5μmより大きい場合には、磁気記録媒体として用いた場合、電磁変換特性が悪化したり、磁気ヘッドと傷つけやすくなる場合がある。不活性粒子の平均粒径が0.001μmより小さい場合には、磁気ヘッドとの走行性の良好の効果が小さいため、好ましくない。

【 0 0 3 7 】

本発明のA層に不活性粒子を含有させる場合、含有量は0.01～1重量%が好ましく、より好ましくは0.02～0.05重量%である。不活性粒子の含有量が1重量%より大きい場合、粒子凝集により突起が粗大となって、電磁変換特

性を悪化させたり、突起が削れやすくなることがある。不活性粒子の含有量が 0.01 重量%より小さい場合には、磁気ヘッドとの走行性の良化の効果が小さいため、好ましくない。

【0038】

本発明の積層ポリエステルフィルムの B 層には、製膜および加工時のハンドリング性向上や磁気記録媒体とした際の走行性、走行耐久性の付与の目的から不活性粒子を添加する。この際、B 層に添加する不活性粒子としては、前述のような不活性粒子を用いることができる。不活性粒子は 1 種類でも良いが、2 種類以上併用しても構わない。不活性粒子の平均粒径 d は、磁気記録媒体用に用いる場合には、 $0.01 \sim 2 \mu\text{m}$ が好ましく、より好ましくは $0.01 \sim 1 \mu\text{m}$ である。含有量は $0.001 \sim 3$ 重量%、好ましくは $0.005 \sim 1$ 重量%である。この場合、B 層の厚み t は不活性粒子の平均粒径 d の $0.1 \sim 10$ 倍が好ましく、より好ましくは $0.2 \sim 5$ 倍である。

【0039】

本発明の積層ポリエステルフィルムの B 層の厚みはフィルム全体の厚みの 20%以下であると、製膜性が良好であり好ましい。B 層の厚みは、より好ましくはフィルム全体の厚みの 15%以下、特に好ましくは 10%以下である。また、積層フィルムとして用いる際の、B 層の厚みは $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ であると、製膜性がより一層良好となり好ましい。B 層の厚みは、好ましくは $0.03 \sim 2 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.05 \sim 1 \mu\text{m}$ である。

【0040】

本発明の積層ポリエステルフィルムは、A 層/B 層の 2 層積層構成であっても、十分に発明の効果を発揮するが、基層部 (A 層) の両側に異なるフィルムを積層した C 層/A 層/B 層の少なくとも 3 層積層構成であってもよい。3 層積層構成とする場合にも、B 層は磁気テープの走行性を担う必要があるため、上述の通り、比較的粒径の大きな不活性粒子を含有する必要がある。ただし、この場合、磁気テープとしたときの電磁変換特性や磁気ヘッドとの走行性を担う表面は C 層が担うため、基層部である A 層は実質的に不活性粒子を含有しない平滑な層とすることができる。

【 0 0 4 1 】

3層積層とする場合、C層に添加する不活性粒子の平均粒径は、 $0.001 \sim 0.5 \mu\text{m}$ が好ましく、含有量は $0.01 \sim 1$ 重量%が好ましい。また、C層の厚みは、 $0.01 \mu\text{m} \sim 1 \mu\text{m}$ が好ましく、より好ましくは $0.03 \mu\text{m} \sim 0.5 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $0.05 \sim 0.3 \mu\text{m}$ である。

【 0 0 4 2 】

本発明の積層ポリエステルフィルムのB層側の表面の表面粗さ $Ra_{(B)}$ は $3 \sim 15 \text{nm}$ であり、好ましくは $5 \sim 12 \text{nm}$ 、さらに好ましくは $7 \sim 10 \text{nm}$ である。 $Ra_{(B)}$ が 3nm より小さい場合には、製膜および加工工程において十分なハンドリング性が得られず生産性が低下したり、磁気テープに加工した際の走行性や耐摩耗性が低下して、十分な磁気テープ特性が得られないため好ましくない。 $Ra_{(B)}$ が 15nm より大きい場合には、磁気テープとして用いる際、走行面側の粒子が脱落し易くなり、走行特性を悪化させたり、ドロップアウトなどの原因となるため好ましくない。

【 0 0 4 3 】

本発明の積層ポリエステルフィルムのB層と反対側の表面の表面粗さ $Ra_{(NB)}$ は $0.5 \sim 10 \text{nm}$ であり、好ましくは $1 \sim 8 \text{nm}$ 、さらに好ましくは $1.5 \sim 6.5 \text{nm}$ である。 $Ra_{(B)}$ が 0.5nm より小さい場合には、磁気テープに加工した際の磁気ヘッドとの走行性が低下して十分な磁気テープ特性が得られないため好ましくない。 $Ra_{(NB)}$ が 10nm より大きい場合には、磁気テープとして用いる際、電磁変換特性が低下したり、磁気ヘッドを傷つけやすくなるため好ましくない。

【 0 0 4 4 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの表裏の表面粗さの差 $Ra_{(B)} - Ra_{(NB)}$ は $1 \sim 7 \text{nm}$ であり、B層側の表面粗さの方が大きい。好ましくは $2 \sim 5 \text{nm}$ である。 $Ra_{(B)} - Ra_{(NB)}$ が 7nm より大きい場合、比較的粗いB層側の表面が、平滑なB層と反対側の表面に転写し、磁気テープとした際の磁性面側が粗くなって、電磁変換特性を低下させるため好ましくない。また、 $Ra_{(B)} - Ra_{(NB)}$ が 1nm より小さい場合には、製膜、加工工程において、ハンドリング性が低下

し、ロールとして巻き取ることが困難となり、生産性が低下するため好ましくない。

【0045】

本発明の積層ポリエステルフィルムのB層と反対側の表面の粗大突起数H1は、電磁変換特性、走行耐久性の観点から、 $100\text{個}/\text{cm}^2$ 以下であり、好ましくは $50\text{個}/\text{cm}^2$ 以下、より好ましくは $10\text{個}/\text{cm}^2$ 以下である。同様に粗大突起数H2は $10\text{個}/\text{cm}^2$ 以下であり、好ましくは $5\text{個}/\text{cm}^2$ 以下、より好ましくは $2\text{個}/\text{cm}^2$ 以下である。なお、本発明においてフィルム表面の粗大突起数を表すH1、H2は、後述の測定法によって定義される値である。

【0046】

本発明の積層ポリエステルフィルムのA層中の実体平均粒径 D_v と不活性粒子の粒径Dの比 D_v/D は1～3であり、好ましくは1～2、より好ましくは1～1.5である。粒子の実体平均粒径は、フィルム中の粒子の粒子周りのボイドの大きさを含めた大きさである。本発明のA層に用いるポリマーアロイはポリエチレンテレフタレートなどのポリエステルと比較して溶融粘度が大きいことや粒子との親和性が低いことが理由と考えられるが、粒子周りにボイドがしやすい特徴がある。粒子周りにできるボイドが大きいと製膜、加工工程中や磁気テープとした場合の走行中に粒子が脱落しやすくなり、磁気テープ特性を低下させるほか、突起が扁平となって、磁気ヘッドとの接触面積が増え、磁気ヘッドの走行性が低下する。このように、 D_v/D が3より大きい場合には粒子脱落や磁気ヘッド走行性が低下するため、好ましくない。

【0047】

本発明のA層中のポリイミドの含有量は、ポリマーアロイ中の5～30重量%の範囲にあることが好ましい。さらに好ましくは、8～15重量%である。一般的にポリエステルとポリイミドの溶融粘度は大きく異なるため、ポリイミドの含有量が5重量%未満であると、押出機にて十分に微分散することが困難な場合があり、ポリイミドのドメインが粗大となることによって、表面突起が粗大となる場合がある。また、ポリイミドの含有量が30重量%を超える量であると、押出成形加工や延伸加工を施すことが困難となり、フィルム破れや押出時の口金すじ

などの製膜、加工上のトラブルの原因となったり、粒子の周りに生成するボイドが大きくなり、本発明の範囲内に制御できない場合がある。

【 0 0 4 8 】

本発明の積層ポリエステルフィルムは、本発明の効果を阻害しない範囲内で、熱安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、難燃剤、顔料、染料、脂肪酸エステル、ワックスなどの有機滑剤などが添加されてもよい。

【 0 0 4 9 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの長手方向のヤング率と幅方向のヤング率の和は、10～25 GPaの範囲であることが好ましく、より好ましくは12～22 GPa、さらに好ましくは14～20 GPaである。該ヤング率の和が10 GPa未満であれば、例えば、磁気記録媒体用などに用いる場合、走行時の磁気記録ヘッドやガイドピンから受ける張力のため、磁気テープに伸び変形が生じやすくなり、さらに電磁変換特性に悪影響を与えたりして、実用上使用に耐えない場合がある。また、該ヤング率の和が25 GPaを越えるフィルムは工業的に製造が困難であったり、フィルムの耐引裂性や寸法安定性が著しく低下したりする場合がある。

【 0 0 5 0 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの長手方向のヤング率は5.5 GPa以上が好ましい、より好ましくは6 GPa以上である。長手方向のヤング率が5.5 GPaに満たない場合には、磁気テープとして用いる際、磁気ヘッドとのヘッド当たりが悪くなり、電磁変換特性に悪影響を与えたりして、実用上使用に耐えない場合がある。

【 0 0 5 1 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの長手方向の温度100℃、30分における熱収縮率は、テープの伸び変形性および保存性の観点から、1.2%以下であることが好ましい。より好ましくは、1%以下である。該熱収縮率が1.2%を越える場合は、寸法安定性が損なわれやすくなる場合がある。例えば磁気記録媒体用においては、ベースフィルムの磁気層を塗布するなどのフィルム加工工程における熱履歴や走行時の磁気テープと磁気記録ヘッドとの摩擦熱による磁気テー

プの昇温時にテープの熱変形が起こりやすくなったり、フィルム表面の耐久性が劣下したり、テープの保存性が悪化する場合がある。

【 0 0 5 2 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの長手方向の温度 8 0 °C、3 0 分における熱収縮率は、テープの伸び変形性および保存性の観点から、0 . 3 % 以下であることが好ましい。より好ましくは、0 . 2 5 % 以下である。

【 0 0 5 3 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの幅方向の温度 1 0 0 °C、3 0 分における熱収縮率は、テープの伸び変形性および保存性の観点から、0 . 5 % 以下であることが好ましい。より好ましくは、0 . 3 % 以下である。該熱収縮率が 0 . 5 % を越える場合は、寸法安定性が損なわれやすくなる場合がある。例えば磁気記録媒体用においては、ベースフィルムの磁気層を塗布するなどのフィルム加工工程における熱履歴や走行時の磁気テープと磁気記録ヘッドとの摩擦熱による磁気テープの昇温時にテープの熱変形が起こりやすくなったり、フィルム表面の耐久性が劣下したり、テープの保存性が悪化する場合がある。

【 0 0 5 4 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの幅方向の温度 8 0 °C、3 0 分における熱収縮率は、テープの伸び変形性および保存性の観点から、0 . 1 % 以下であることが好ましい。より好ましくは、0 . 0 5 % 以下である。

【 0 0 5 5 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの 6 0 °C、8 0 % R H の条件下、長手方向に 2 6 M P a の荷重をかけた状態で、7 2 時間放置した場合における幅方向の寸法変化率は、テープの伸び変形性の観点から - 0 . 4 ~ 0 % の範囲であることが好ましい。より好ましくは、- 0 . 3 ~ 0 % である。この寸法変化率が上記範囲から外れた場合、磁気テープとして使用する際、トラックずれを起こしやすくなる場合がある。

【 0 0 5 6 】

本発明の A 層のポリマーの補外ガラス転移開始温度 ($T_{g\ onset}$) は、特に限定されないが 9 0 ~ 1 5 0 °C であることが好ましく、より好ましくは 9 5 ~ 1 3

0℃、さらに好ましくは98～120℃の範囲内である。

【0057】

本発明のA層を構成するポリマーアロイの固有粘度は、フィルム成形加工の安定性や熱可塑性樹脂との混合性の観点から、0.55～3.0 (dl/g) の範囲であることが好ましく、さらに好ましくは、0.60～2.0 (dl/g) である。また、製膜後のフィルムの固有粘度は、フィルム成形加工の安定性や寸法安定性などの観点から、0.50～2.0 (dl/g) の範囲であることが好ましく、さらに好ましくは0.55～1.0 (dl/g) である。

【0058】

本発明の積層ポリエステルフィルムの用途は、均一で微細な表面形態と高い寸法安定性を必要とするデータストレージ用などの磁気記録媒体である。中でも好ましくは、高密度磁気記録用テープ、例えば、データストレージ用のベースフィルムに適したものである。該データストレージのデータ記録容量は、好ましくは30GB（ギガバイト）以上、より好ましくは70GB以上、さらに好ましくは100GB以上である。

【0059】

本発明の積層ポリエステルフィルムの厚みは、3～8 μ mが好ましく、より好ましくは4～7 μ mである。厚みが3 μ mより小さい場合は、テープに腰がなくなるため、電磁変換特性が低下することがあり、8 μ mより大きい場合は、テープ1巻あたりのテープ長さが短くなるため、磁気テープの小型化、高容量化が困難になる場合がある。

【0060】

本発明の積層ポリエステルフィルムは、さらに他のポリマー層、例えば、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリ塩化ビニリデンおよびアクリル系ポリマーを直接、あるいは接着剤などの層を介して積層してもよい。

【0061】

本発明の2軸延伸フィルムは、必要に応じて、熱処理、成形、表面処理、ラミネート、コーティング、印刷、エンボス加工、エッチングなどの任意の加工を行ってもよい。

【 0 0 6 2 】

また、本発明の2軸延伸フィルムの少なくとも片面に磁性層を設けることにより、磁気記録媒体として用いることができる。磁性層を設ける面は、フィルムのいずれの面でも、あるいは、両方の面でも良いが、前記積層構造のフィルムを用いる場合は、A層側に磁性層を設けることが好ましい。

【 0 0 6 3 】

磁性層としては、強磁性金属薄膜や強磁性金属微粉末を結合剤中に分散してなる磁性層や金属酸化物塗布による磁性層などが好適な例として挙げられる。前記強磁性金属薄膜に用いる金属としては、鉄、コバルト、ニッケルやその合金等が好ましい。また、前記強磁性金属微粉末を結合剤中に分散してなる磁性層に用いる強磁性金属微粉末としては、強磁性六方晶フェライト微粉末や、鉄、コバルト、ニッケルやその合金からなる粉末が好ましい。前記結合剤としては熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、反応型樹脂やこれらの混合物などが好ましい。

【 0 0 6 4 】

磁性層の形成法としては、磁性粉を熱硬化性、熱可塑性あるいは放射線硬化性などの結合剤と混練し、塗布、乾燥を行う塗布法、金属または合金を蒸着、スパッタリング、イオンプレーティング法などにより、基材フィルム上に直接磁性金属薄膜層を形成する乾式法のいずれの方式も採用できる。

【 0 0 6 5 】

本発明の磁気記録媒体においては、磁性層上に保護膜が設けられていてもよい。この保護膜によってさらに走行耐久性、耐食性を改善することができる。保護膜としては、シリカ、アルミナ、チタニア、ジルコニア、酸化コバルト、酸化ニッケルなどの酸化物保護膜、窒化チタン、窒化ケイ素、窒化ホウ素などの窒化物保護膜、炭化ケイ素、炭化クロム、炭化ホウ素等の炭化物保護膜、グラファイト、無定型カーボンなどの炭素からなる炭素保護膜があげられる。

【 0 0 6 6 】

前記炭素保護膜は、プラズマCVD法、スパッタリング法等で作成したアモルファス、グラファイト、ダイヤモンド構造、もしくはこれらの混合物からなるカーボン膜であり、特に好ましくは一般にダイヤモンドライクカーボンと呼ばれる

硬質カーボン膜である。

【 0 0 6 7 】

また、この硬質炭素保護膜上に付与する潤滑剤との密着をさらに向上させる目的で、硬質炭素保護膜表面を酸化性もしくは不活性気体のプラズマによって表面処理しても良い。

【 0 0 6 8 】

本発明では、磁気記録媒体の走行耐久性および耐食性を改善するため、上記磁性層もしくは保護膜上に、潤滑剤や防錆剤を付与することが好ましい。

【 0 0 6 9 】

本発明の積層ポリエステルフィルムの製造方法は、ポリエステルとポリイミドのポリマーアロイを押出機を用いた溶融押出により口金から吐出し、溶融ポリマーを冷却固化させてシート状に成形することが好ましい。その際、 $1.2\mu\text{m}$ カット以下の繊維焼結ステンレス金属フィルターによりポリマーを濾過することが、ポリマーアロイ中の未溶融物を除去する手法として好ましく例示される。より好ましくは、 $0.8\mu\text{m}$ 以下のフィルターである。また、必要に応じて、2つ以上のフィルター部分を通過させ、2段階以上で濾過するとより効果的に未溶融物を除去できるため好ましい。

【 0 0 7 0 】

本発明の積層ポリエステルは該シート状成型物を長手方向と幅方向の2軸に延伸した後、熱処理することにより製造される。この際、長手方向、および、幅方向の延伸は1段階ずつで行っても良いが、少なくとも2段階以上に分けて延伸する場合、本発明の効果を得られやすいため好ましい。また、再縦、再横延伸を行う場合、本発明の効果を得られやすく、特に好ましい。この場合、再縦延伸、次に再横延伸の順で行うことが好ましい。

【 0 0 7 1 】

本発明の積層ポリエステルを製造する際の長手方向の総延伸倍率は、特に限定されないが、3～8倍が好ましく、より好ましくは4.5～6倍である。長手方向の総延伸倍率が3倍より小さな場合は、長手方向の弾性率が低下するため、電磁変換特性が低下することがあり、長手方向の総延伸倍率が8倍より大きな場合

には、粒子周りのボイドが大きくなり、 D_v/D が本発明の範囲から外れることがある。このうち、再縦延伸倍率を総縦延伸倍率の25%以下にする場合、本発明の効果が得られやすく好ましい。再縦延伸を行う場合、1度目の縦延伸の延伸倍率は2.5～4.0倍、再縦延伸倍率は1.2～1.8倍が好ましい。

【0072】

本発明の積層ポリエステルを製造する際の幅方向の総延伸倍率は、特に限定されないが、3～8倍が好ましく、より好ましくは3.5～6倍である。幅方向の総延伸倍率が3倍より小さな場合は、粒子周りのボイドが長手方向に大きくなり、 D_v/D が本発明の範囲から外れたり、磁気テープとした際のトラックずれが起こりやすくなったりする。幅方向の総延伸倍率が6倍以上である場合、フィルム破れによって生産性が低下することがある。なお、再横延伸倍率を総横延伸倍率の20%以上にする場合、本発明の効果が得られやすく好ましい。再横延伸を行う場合、1度目の横延伸の延伸倍率は3.0～4.5倍、再縦延伸倍率は1.2～2倍が好ましい。

【0073】

本発明の積層ポリエステルを製造する際の長手方向の延伸温度は、特に限定されないが、A層のポリマーアロイのガラス転移温度 $T_g + 10^\circ\text{C} \sim T_g + 30^\circ\text{C}$ の範囲で行う場合、ポリマーアロイの延伸性が良好となり、 D_v/D が本発明の範囲内に制御しやすいため好ましい。再縦延伸を行う場合、再縦延伸温度は $T_g + 30^\circ\text{C} \sim T_g + 50^\circ\text{C}$ が好ましい。

【0074】

本発明の積層ポリエステルを製造する際の幅方向の延伸温度は、特に限定されないが、A層のポリマーアロイの $T_g + 10^\circ\text{C} \sim T_g + 50^\circ\text{C}$ の範囲で行う場合、縦延伸によって長手方向にボイドが生成することを抑制し、 D_v/D を本発明の範囲内に制御しやすいため好ましい。再横延伸を行う場合、再横延伸温度は $T_g + 80^\circ\text{C} \sim T_g + 110^\circ\text{C}$ が好ましい。

【0075】

本発明の積層ポリエステルを製造する際の長手方向の延伸速度は、特に限定されないが、5万～20万%/分の範囲で行う場合、ポリマーアロイの延伸性が良

好となり、 D_v/D が本発明の範囲内に制御しやすいため好ましい。再縦延伸速度は7万～20万%/分の範囲が好ましい。

【0076】

本発明の積層ポリエステルを製造する際の幅方向の延伸速度は、特に限定されないが、2000～10000%/分の範囲で行う場合、ポリマーアロイの延伸性が良好となり、 D_v/D が本発明の範囲内に制御しやすいため好ましい。再横延伸速度は5000～20000%/分が好ましい。

【0077】

本発明の積層ポリエステルを製造する際の熱処理は、 $T_g + 100^\circ\text{C} \sim T_g + 125^\circ\text{C}$ の範囲で0.2～10秒行うことが本発明の効果を得るため好ましい方法である。

【0078】

本発明の積層ポリエステルフィルムの延伸形式としては、長手方向に延伸した後に幅方向に延伸を行うなどの逐次二軸延伸法や、同時二軸テンター等を用いて長手方向と幅方向を同時に延伸する同時二軸延伸法、さらに、逐次二軸延伸法と同時二軸延伸法を組み合わせた方法などが包含される。特に、最終の延伸を幅方向に行うことが、 D_v/D を本発明の範囲内に制御するため好ましい方法として例示される。

【0079】

以下、本発明の積層ポリエステルフィルムの製造方法の例について説明するが、これに限定されるものではない。ここでは、A層ポリマーのポリエステルとして、ポリエチレンテレフタレートを用い、ポリイミドとして、ポリエーテルイミド”ウルテム”を用いたA/B2層積層ポリエステルフィルムの例を示す。製造条件は、用いるポリエステルおよびポリイミド、または積層構成によって異なる。

【0080】

まず、常法に従い、テレフタル酸とエチレングリコールをエステル化することにより、または、テレフタル酸ジメチルとエチレングリコールをエステル交換反応することにより、ビス-β-ヒドロキシエチルテレフタレート（BHT）を得

る。次にこのBHTを重合槽に移行しながら、真空下で280℃に加熱して重合反応を進める。ここで、固有粘度が0.5程度のポリエステルを得る。得られたポリエステルをペレット状にして減圧下におき、固相重合する。固相重合する場合は、ペレット状ポリエステルをあらかじめ180℃以下の温度で予備結晶化させた後、190～250℃で1mmHg程度の減圧下、10～50時間固相重合させる。また、フィルムを構成するポリエステルに不活性粒子を含有させる場合には、エチレングリコールに不活性粒子を所定割合にてスラリーの形で分散させ、このエチレングリコールを重合時に添加する方法が好ましい。不活性粒子を添加する際には、例えば、不活性粒子を合成時に得られる水ゾルやアルコールゾルを一旦乾燥させることなく添加すると粒子の分散性がよい。また、不活性粒子の水スラリーを直接ポリエステルペレットと混合し、ベント式2軸混練押出機を用いて、ポリエステルに練り込む方法も有効である。不活性粒子の含有量を調節する方法としては、上記方法で高濃度の不活性粒子のマスタを作っておき、それを製膜時に不活性粒子を実質的に含有しないポリエステルで希釈して不活性粒子の含有量を調節する方法が有効である。

【0081】

次に、該ポリエチレンテレフタレートのパelletとポリエーテルイミドのパelletを、所定の割合で混合して、270～300℃に加熱されたベント式の2軸混練押出機に供給して、溶融押出する。このときの剪断速度は50～300 sec⁻¹が好ましく、より好ましくは100～200 sec⁻¹、滞留時間は0.5～10分が好ましく、より好ましくは1～5分の条件である。さらに、上記条件にて両者が相溶しない場合は、得られたチップを再び2軸押出機に投入し相溶するまで押出を繰り返してもよい。

【0082】

得られたポリエーテルイミド含有のポリエステルのパelletを、180℃で3時間以上真空乾燥した後、固有粘度が低下しないように窒素気流下あるいは真空下で、280～320℃に加熱された押出機に供給し、スリット状のダイから押出し、キャストイングロール上で冷却して未延伸フィルムを得る。この際、異物や変質ポリマーを除去するために各種のフィルター、例えば、焼結金属、多孔性

セラミック、サンド、金網などの素材からなるフィルターを用いることが好ましい。特に好ましくは、サンドフィルター、 $1.2\mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターおよび $0.8\mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターを順に用いて、3段階に濾過する方法である。また、必要に応じて、定量供給性を向上させるためにギアポンプを設けてもよい。また、フィルムを積層する場合には、2台以上の押出機およびマニホールドまたは合流ブロックを用いて、複数の異なるポリマーを溶融積層しても良い。

【0083】

次に、この未延伸フィルムを2軸延伸し、2軸配向させる。延伸方法としては、逐次2軸延伸法または同時2軸延伸法を用いることができる。ここでは、最初に長手方向、次に幅方向の延伸を行う逐次2軸延伸法を用いる。延伸温度については、積層の構成成分により異なるが、例えば、2層構造でA層、B層ともにポリエチレンテレフタレートとポリエーテルイミドの混合ポリマー（混合重量比9：1）からなる場合を例示して説明する。未延伸フィルムを $70\sim 170^{\circ}\text{C}$ の加熱ロール群で加熱し、長手方向に3～8倍に1段もしくは多段で延伸（再縦延伸を行う場合は1段目の延伸は2.5～4倍）し、 $20\sim 50^{\circ}\text{C}$ の冷却ロール群で冷却する。長手方向延伸速度は $5000\sim 200000\%$ /分の範囲で行うのが好ましい。続いて、幅方向の延伸を行う。幅方向の延伸方法としては、例えば、テンターを用いる方法が一般的である。幅方向の延伸倍率は3～8倍（再横延伸を行う場合は1段目の延伸は3～4.5倍）、延伸速度は $2000\sim 10000\%$ /分、温度は $95\sim 160^{\circ}\text{C}$ の範囲で行うのが好ましい。さらに必要に応じて、再縦延伸および／または再横延伸を行う。その場合の延伸条件としては、長手方向の延伸は、温度 $80\sim 180^{\circ}\text{C}$ の加熱ロール群で、延伸倍率1.2～1.8倍、幅方向の延伸方法としてはテンターを用いる方法が好ましく、温度 $110\sim 225^{\circ}\text{C}$ 、延伸倍率1.2～2.0倍で行うのが好ましい。続いて、この延伸フィルムを緊張下または幅方向に弛緩しながら熱処理する。この場合の熱処理温度は、 $200^{\circ}\text{C}\sim 230^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは、 $215\sim 240^{\circ}\text{C}$ で、時間は0.2～10秒の範囲で行うのが好ましい。

【0084】

(物性の測定方法ならびに効果の評価方法)

本発明における特性値の測定方法並びに効果の評価方法は次の通りである。

【 0 0 8 5 】

(1) 表面粗さ R_a

小坂研究所製の高精度薄膜段差測定器 E T - 1 0 を用いて中心線平均粗さ R_a を測定した。条件は下記のとおりであり、フィルム幅方向に走査して 2 0 回測定を行った平均値をもって値とした。

- ・ 触針先端半径 : $0.5 \mu m$
- ・ 触針荷重 : $5 m g$
- ・ 測定長 : $1 m m$
- ・ カットオフ値 : $0.08 m m$

(2) 粒子の実体平均粒径 D_v

スライドガラスに長方形に切断したフィルムを 1 枚のせて、流動パラフィンをその上に落下させた後、カバーガラス置き、フィルム表面を透過型光学顕微鏡を用いて暗視野法で観察するとフィルム内部に存在する粒子が星点状に観察される。この時、フィルム表面近傍に位置する粒子に焦点を合わせた画像を、画像解析装置のハイビジョンモニターに取り込み、入力した異物像を二値化し、粒子の数と面積を求める。面積は等面積の円とし、円相当径を求め、これを粒子の実体平均粒径とした。この観察を場所を変えて、1 0 回繰り返す。

【 0 0 8 6 】

フィルム中に 2 種類以上の異なる粒径を有する粒子が存在する場合、円相当径の分布が 2 つ以上のピークを持つ分布となって現れる。この場合は、それぞれの分布に対する実体平均粒径 D_v を測定する。

【 0 0 8 7 】

(3) 不活性粒子の平均粒径 D

フィルム断面を透過型電子顕微鏡 (T E M) を用い、1 万倍以上の倍率で観察する。T E M の切片厚さは約 $100 n m$ とし、場所を変えて 1 0 0 視野以上測定する。測定した等価円相当径の重量平均を不活性粒子の平均粒径 D とした。

【 0 0 8 8 】

フィルム中に粒径の異なる2種類以上の粒子が存在する場合、上記の等価円相当径の個数分布が2種類以上のピークを有する分布となるため、そのそれぞれについて、別個に平均粒径を算出する。

【0089】

(4) 実体平均粒径／平均粒径 (D_v/D)

前記(2)の測定より得られた実体平均粒径 D_v と(3)の測定より得られた不活性粒子の平均粒径 D より算出する。

【0090】

フィルム中に2種類以上の粒径の異なる粒子が存在する場合、実体平均粒径、平均粒径ともに2種類以上算出されるので、まず、それぞれの粒径の粒子に対する D_v/D を別個に算出したのち、粒子の含有量で重みづけして平均した値を求める。

【0091】

(5) ポリエステル、ポリイミド、不活性粒子の含有量

ポリエステルとポリイミドとの両者を溶解する適切な溶媒に溶解し、 ^1H 核のNMR(核磁気共鳴)スペクトルを測定する。適切な溶媒は、ポリマーの種類によって異なるが、例えば、ヘキサフルオロイソプロパノール(HFIP)／重クロロホルムが用いられる。得られたスペクトルにおいて、ポリエステル、ポリイミドに特有の吸収(例えばPETであればテレフタル酸の芳香族プロトンの吸収、PEIであればビスフェノールAの芳香族のプロトンの吸収)のピーク面積強度をもとめ、その比率とプロトン数よりポリエステルとポリイミドのモル比を算出する。さらに各々のポリマーの単位ユニットに相当する式量より重量比を算出する。測定条件は、例えば、以下のような条件であるが、ポリマーの種類によって異なるため、この限りではない。

【0092】

装置	: BRUKER DRX-500 (ブルカー社)
溶媒	: HFIP／重クロロホルム
観測周波数	: 499.8 MHz
基準	: TMS (テトラメチルシラン) (0 ppm)

測定温度 : 30℃
観測幅 : 10 KHz
データ点 : 64 K
acquisiton time : 4.952 秒
pulse delay time : 3.048 秒
積算回数 : 256 回

また、必要に応じて、顕微FT-IR法（フーリエ変換顕微赤外分光法）で組成分析を行ってもよい。その場合、ポリエステルのカルボニル基に起因するピークとそれ以外の物質に起因するピークの比から求める。なお、ピーク高さ比を重量比に換算するために、あらかじめ重量比既知のサンプルで検量線を作成してポリエステルとそれ以外の物質の合計量に対するポリエステル比率を求める。これと、不活性粒子含有量よりPEI比率を求める。また、必要に応じてX線マイクロアナライザーを併用してもよい。

【0093】

また、不活性粒子の含有量については、ポリエステル、ポリイミドは溶解するが不活性粒子は溶解させない溶媒を選んで、ポリエステル、ポリイミドを溶解し、不活性粒子を遠心分離して重量百分率を求めた。

【0094】

（6）積層厚さ

透過型電子顕微鏡（日立製H-600型）を用いて、加速電圧100 kVで、フィルム断面を、超薄切片法（RuO₄染色）で観察する。その界面の観察結果から、各層の厚さを求める。倍率は、判定したい積層厚さによって適切な倍率を選ぶが、1万～10万倍が適当である。

【0095】

また、2次イオン質量分析装置（SIMS）を用いて測定することもできる表層から深さ3000 nmの範囲のフィルム中の不活性粒子の内もっとも高濃度の粒子（あるいはPEI）に起因する元素と、ポリエステルの炭素元素の濃度比（M⁺/C⁺）を、表面から深さ3000 nmまで厚さ方向にSIMSで分析する。表層では不活性粒子（あるいはPEI）に起因する元素濃度は低く、表面から遠

ざかるにつれて不活性粒子（あるいはPEI）に起因する元素濃度は高くなる。
 本発明フィルムの場合には一旦極大値となった不活性粒子（あるいはPEI）に起因する元素濃度がまた減少し始める。この濃度分布曲線において、不活性粒子（あるいはPEI）に起因する元素濃度が極大値の1/2まで減少した深さを積層厚さとする。条件は次の通りである。

【0096】

i) 測定装置

2次イオン質量分析装置 (SIMS)

西独、ATOMIKA社製 A-DIDA3000

ii) 測定条件

1次イオン種 : O_2^+

1次イオン加速電圧 : 12KV

1次イオン電流 : 200nA

ラスター領域 : 400 μ m \square

分析領域 : ゲート30%

測定真空度 : 5.0×10^{-9} Torr

E-GUN : 0.5KV-3.0A

なお、表層から深さ3000nmの範囲に最も多く含有する不活性粒子が有機高分子粒子の場合はSIMSでは測定が難しいので、表面からエッチングしながらXPS (X線光電子分光法)、IR (赤外分光法) などで上記同様のデプスプロファイルを測定し積層厚みを求めることもできる。

【0097】

(7) ヤング率

ASTM-D882に規定された方法に従って、インストロンタイプの引張試験機を用いて測定した。測定は下記の条件とした。

【0098】

測定装置 : オリエンテック (株) 製フィルム強伸度自動測定装置

“テンシロンAMF/RTA-100”

試料サイズ : 幅10mm \times 試長間100mm、

引張り速度：200 mm/分

測定環境：温度 23℃、湿度 65%RH

【0099】

(8) 熱収縮率

JIS C2318に従って、測定した。

試料サイズ：幅 10 mm、標線間隔 200 mm

測定条件：温度 80℃、100℃、処理時間 30 分、無荷重状態

熱収縮率を次式より求めた。

$$\text{熱収縮率 (\%)} = [(L_0 - L) / L_0] \times 100$$

L_0 ：加熱処理前の標線間隔

L ：加熱処理後の標線間隔

【0100】

(9) 粗大突起数 H1、H2

測定面 (100 cm^2) 同士を 2 枚重ね合わせて静電気力 (印加電圧 5.4 kV) で密着させた後、2 枚のフィルム間で粗大突起の光の干渉によって生じるニュートン環から粗大突起の高さを判定し、1 重環以上の粗大突起数を H1、2 重環以上の粗大突起数を H2 とした。なお、光源はハロゲンランプに 564 nm のバンドパスフィルタをかけて用いた。

【0101】

(10) 幅方向の寸法変化率 (%)

サンプルサイズ：長手方向 100 mm、幅方向 30 mm

上記サンプルを、23℃、65%RH、無荷重の条件下にて、24 時間調湿調温した後、大日本印刷 (株) 製クロムマスク上に、サンプルを静電気により貼り付け、光学顕微鏡を用いて、幅方向の長さ (L_{0W}) を測定する。その後、60℃、80%RH の条件下、長手方向に 32 MPa の荷重をかけた状態で、72 時間放置した。72 時間後、荷重を解放し、23℃、65%RH、無荷重の条件下にて 24 時間調湿調温後、幅方向の長さ (L_{1W}) を測定した。寸法変化率は下記式により求めた。

$$\text{寸法変化率 (\%)} = [(L_{1W} - L_{0W}) / L_{0W}] \times 100$$

【0102】

(11) 磁気テープの電磁変換特性 (S/N)

フィルム表面に、下記組成の磁性塗料および非磁性塗料をエクストルージョンコーターにより重層塗布（上層は磁性塗料で、塗布厚 $0.1 \mu\text{m}$ 、非磁性下層の厚みは適宜変化させた。）し、磁気配向させ、乾燥させる。次いで反対面に下記組成のバックコート塗料を塗布した後、小型テストカレンダー装置（スチール／ナイロンロール、5段）で、温度 85°C 、線圧 200 kg/cm でカレンダー処理した後、 60°C で、48時間キュアリングする。上記テープ原反を 8 mm 幅にスリットし、パンケーキを作成した。次いで、このパンケーキから長さ 200 m 分をカセットに組み込んで、カセットテープとした。

【0103】

(磁性塗料の組成)

・強磁性金属粉末	:	100重量部
・変成塩化ビニル共重合体	:	10重量部
・変成ポリウレタン	:	10重量部
・ポリイソシアネート	:	5重量部
・ステアリン酸	:	1.5重量部
・オレイン酸	:	1重量部
・カーボンブラック	:	1重量部
・アルミナ	:	10重量部
・メチルエチルケトン	:	75重量部
・シクロヘキサノン	:	75重量部
・トルエン	:	75重量部

【0104】

(バックコートの組成)

・カーボンブラック（平均粒径 20 nm ）	:	95重量部
・カーボンブラック（平均粒径 280 nm ）	:	10重量部
・ α アルミナ	:	0.1重量部
・変成ポリウレタン	:	20重量部

・ 変成塩化ビニル共重合体	:	3 0 重量部
・ シクロヘキサノン	:	2 0 0 重量部
・ メチルエチルケトン	:	3 0 0 重量部
・ トルエン	:	1 0 0 重量部

【 0 1 0 5 】

市販の Hi 8 用 V T R を用いてビデオ S / N 比を求めた。S / N 比の測定には、T V 試験信号発生器から信号を供給し、ビデオノイズメーターを用い、比較例 1 より作成したテープを 0 デシベル (d B) として比較測定した。なお、走行条件は 2 5 ℃、6 0 % R H である。

【 0 1 0 6 】

電磁変換特性が比較例 1 と比較して、次の基準で評価した。

+ 0 . 5 d B 以上 : ◎

高密度記録磁気テープ用途として、優れたレベルである。

- 0 . 5 d B 以上、+ 0 . 5 d B 未満 : ○

高密度記録磁気テープ用途として、使用可能なレベルである。

- 0 . 5 d B 未満 : ×

高密度記録磁気テープ用途として、不十分なレベルである。

【 0 1 0 7 】

(1 2) ドロップアウト

上記のカセットテープと装置を用いて、ドロップアウト (D O) 個数を求めた。

【 0 1 0 8 】

D O 個数の測定は、作成した本発明のテープを市販のカメラ一体型 Hi 8 テープレコーダーで録画後、1 分間再生して画面に現れたブロック状のモザイク個数を数えることによって行った。なお、走行条件は 2 5 ℃、6 0 % R H である。

【 0 1 0 9 】

3 0 個以下 : ○

高密度記録磁気テープ用途として、使用可能なレベルである。

【 0 1 1 0 】

30個以上：×

高密度記録磁気テープ用途として、不十分なレベルである。

【0111】

(13) トラックずれ

上記テープ原反を1/2インチ幅にスリットし、磁気テープとして、長さ670m分を、カセットに組み込んでカセットテープとした。

【0112】

上記作成したカセットテープをQuantum社製DLTIV Driveに、データを読み込んだ後、カセットテープを60℃、80%RHの雰囲気中に100時間保存した後、上記で作成したカセットテープを、下記の1～5の条件で順番に走行させたときの、幅方向の寸法変化を常時読みとり、下記のとおり最大寸法変化幅および走行前後でのトラックずれを求めた。幅方向の寸法変化は、サーボからテープまでの距離(約1.5mm)の変化で測定した。25℃、65%RH条件下でのサーボからテープまでの距離の初期値をL0(μm)、下記条件5で走行させた後のサーボからテープまでの距離をL1(μm)とし、以下の式よりトラックずれを算出した。

【0113】

$$\text{トラックずれ}(\mu\text{m}) = |L0 - L2|$$

条件1：20℃、50%RH、張力 85g 走行回数 3回

条件2：20℃、50%RH、張力140g 走行回数 3回

条件3：40℃、60%RH、張力140g 走行回数 100回

条件4：20℃、50%RH、張力140g 走行回数 3回

条件5：20℃、50%RH、張力 85g 走行回数 3回

このトラックずれが0.5μm以下である場合、高密度記録磁気テープ用途として、使用可能なレベルである(○)と判断し、0.5μmより大きい場合、高密度記録磁気テープ用途として、不十分なレベルである(×)と判断した。

【0114】

(14) 固有粘度

オルトクロロフェノール中、25℃で測定した溶液粘度から下式から計算する

【0 1 1 5】

$$\eta_{sp}/C = [\eta] + K[\eta]^2 \cdot C$$

ここで、 η_{sp} = (溶液粘度/溶媒粘度) - 1、Cは溶媒100mlあたりの溶解ポリマー重量 (g/100ml、通常1.2)、Kはハギンス定数 (0.343とする) である。また、溶液粘度、溶媒粘度はオストワルド粘度計を用いて測定した。

【0 1 1 6】

(15) 補外ガラス転移開始温度 ($T_{g\ onset}$)、ガラス転移温度 (T_g)
下記装置および条件で比熱測定を行い、JIS K7121に従って決定した

【0 1 1 7】

装置 : TA Instrument 社製温度変調DSC

測定条件:

加熱温度 : 270~570 K (RCS冷却法)
温度校正 : 高純度インジウムおよびスズの融点
温度変調振幅: ± 1 K
温度変調周期: 60 秒
昇温ステップ: 5 K
試料重量 : 5 mg
試料容器 : アルミニウム製開放型容器 (22 mg)
参照容器 : アルミニウム製開放型容器 (18 mg)

なお、ガラス転移温度は下記式により算出した。

ガラス転移温度 = (補外ガラス転移開始温度 + 補外ガラス転移終了温度) / 2

【0 1 1 8】

(16) 総合評価

上記評価の電磁変換特性、ドロップアウト、および、トラックずれの特性のうち、いずれもが高密度記録磁気テープ用途として、優れたレベルである (◎) または、使用可能なレベルである (○) ものを、総合的に高密度記録磁気テープ用

途として使用可能（○）と評価し、上記の特性のうち、高密度記録磁気テープ用途として、不十分なレベルである（×）ものが1項目以上あるものについては、総合的に密度記録磁気テープ用途として不十分（×）と評価した。

【0119】

【実施例】

次の実施例に基づき、本発明の実施形態を説明する。

【0120】

実施例1

常法により得られた固有粘度0.85のポリエチレンテレフタレート（PET）のペレット（ T_g 80℃）50重量%と、General Electric（GE）社製の固有粘度0.68の“ウルテム”1010（ T_g 216℃）50重量%とを、290℃に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に供給して、PEIを50重量%含有したブレンドチップ（II）を作成した。

【0121】

次いで、押出機2台を用い、製膜を行った。295℃に加熱された押出機Aには、上記ペレタイズ操作により得たブレンドチップ20重量部と実質的に不活性粒子を含有しない固有粘度0.62のポリエチレンテレフタレート（PET）ペレット58重量部と平均粒径0.17 μm の架橋ジビニルベンゼン粒子を2重量%含有する固有粘度0.62のポリエチレンテレフタレート（PET）ペレット3重量部と平均粒径0.025 μm の γ -アルミナ粒子を2重量%含有する固有粘度0.62のポリエチレンテレフタレート（PET）のペレット20重量部の混合原料（A1）を180℃で3時間真空乾燥した後に供給した。295℃に加熱された押出機Bには、上記ペレタイズ操作により得たブレンドチップ20重量部と実質的に不活性粒子を含有しない固有粘度0.62のポリエチレンテレフタレート（PET）ペレット67重量部と平均粒径0.17 μm の球状シリカ粒子を2重量%含有する固有粘度0.62のポリエチレンテレフタレート（PET）ペレット12重量部と平均粒径0.75 μm の架橋ジビニルベンゼン粒子を1重量%含有する固有粘度0.62のポリエチレンテレフタレート（PET）のペレット1重量部の混合原料（B1）を180℃で3時間真空乾燥した後に供給した。

。続いて、A 1 をサンドフィルター、 $1.2\ \mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターおよび $0.8\ \mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターの順に 3 段階に濾過し、B 1 をサンドフィルター、 $3\ \mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターの順に 2 段階で濾過した後、T ダイ中で合流させ、表面温度 25°C のキャストドラムに静電荷を印加させながら密着冷却固化し、2 層積層未延伸フィルム（積層厚み比 $A\ 1 / B\ 1 = 1\ 1 / 1$ ）を作成した。

【0 1 2 2】

この未延伸フィルムをロール式延伸機にて長手方向に 2 段で、速度 $6\ 0\ 0\ 0\ 0\ \%$ / 分、温度 125°C で 3.0 倍延伸し、さらに、テンターを用いて、幅方向に速度 $3\ 0\ 0\ 0\ \%$ / 分、温度 128°C で 3.4 倍延伸した。続いて、ロール式延伸機で長手方向に 1 段で、温度 140°C で 1.4 倍に再延伸し、テンターを用いて幅方向に温度 205°C で 1.9 倍再延伸した。定長下で温度 220°C で 8 秒間熱処理後、幅方向に 5 % の弛緩処理を行い、厚さ約 $6\ \mu\text{m}$ の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 $5.5\ \mu\text{m}$ 、B 層 $0.5\ \mu\text{m}$ であった。長手方向のヤング率は $6\ \text{GPa}$ 、幅方向のヤング率は $4.7\ \text{GPa}$ であった。

【0 1 2 3】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、ドロップアウトが少なく、電磁変換特性、走行耐久性など磁気記録媒体用ベースフィルムとして優れた特性を有していた。

【0 1 2 4】

実施例 2

実施例 1 と同様にして、表 1 のように、A 層のポリマーのジビニルベンゼン架橋粒子の含有量を 0.1 重量%に変更し、B 層のポリマーをポリエチレンテレフタレート（平均粒径 $0.3\ \mu\text{m}$ のジビニルベンゼン架橋粒子を 0.5 重量%と平均粒径 $0.8\ \mu\text{m}$ のシリカ粒子 0.06 重量%を含有する）に変更し、2 層積層未延伸フィルム（積層厚み比 $A\ 2 / B\ 2 = 1\ 1 / 1$ ）を作成した。

【0 1 2 5】

この未延伸フィルムをロール式延伸機にて長手方向に 2 段で、速度 $6\ 2\ 0\ 0\ 0\ \%$ / 分、温度 125°C で 3.1 倍延伸し、さらに、テンターを用いて、幅方向に

速度 3 3 0 0 % / 分、温度 1 3 0 °C で 3 . 6 倍延伸した。続いて、ロール式延伸機で長手方向に 1 段で、温度 1 4 5 °C で 1 . 5 倍に再延伸し、テンターを用いて幅方向に温度 2 0 0 °C で 1 . 9 倍再延伸した。定長下で温度 2 2 0 °C で 8 秒間熱処理後、幅方向に 5 % の弛緩処理を行い、厚さ約 6 μ m の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 5 . 5 μ m、B 層 0 . 5 μ m であった。長手方向のヤング率は 6 . 2 G P a、幅方向のヤング率は 5 . 1 G P a であった。

【 0 1 2 6 】

この 2 軸配向フィルムは、表 2 に示したとおり、ドロップアウトが少なく、電磁変換特性、走行耐久性など磁気記録媒体用ベースフィルムとして優れた特性を有していた。

【 0 1 2 7 】

実施例 3

表 1 のように、A 層ポリマーの P E T と P E I の重量比を 8 5 : 1 5 に変更した以外は、実施例 1 と同様にして、2 層積層未延伸フィルム（積層厚み比 A 1 / B 1 = 1 1 / 1）を作成した。

【 0 1 2 8 】

この未延伸フィルムをロール式延伸機にて長手方向に 2 段で、速度 5 0 0 0 0 % / 分、温度 1 4 0 °C で 3 . 0 5 倍延伸し、さらに、テンターを用いて、幅方向に速度 2 5 0 0 % / 分、温度 1 3 8 °C で 3 . 5 倍延伸した。続いて、ロール式延伸機で長手方向に 1 段で、温度 1 5 0 °C で 1 . 5 5 倍に再延伸し、テンターを用いて幅方向に温度 2 0 5 °C で 1 . 9 5 倍再延伸した。定長下で温度 2 2 5 °C で 9 秒間熱処理後、幅方向に 3 % の弛緩処理を行い、厚さ約 6 μ m の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 5 . 5 μ m、B 層 0 . 5 μ m であった。長手方向のヤング率は 5 . 8 G P a、幅方向のヤング率は 4 . 8 G P a であった。

【 0 1 2 9 】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、ドロップアウトが少なく、電磁変換特性、走行耐久性など磁気記録媒体用ベースフィルムとして優れ

た特性を有していた。

【0130】

実施例 4

表 1 のように、A 層ポリマーをポリ（エチレン-2, 6-ナフタレンジカルボキシレート）（PEN）と PEI の混合ポリマーを（重量比 90 : 10、平均粒径 $0.25\ \mu\text{m}$ のシリカ粒子を 0.01% 含有）に変更し、B 層ポリマー PEN / PEI（重量比 90 : 10、平均粒径 $0.25\ \mu\text{m}$ の架橋ジビニルベンゼン粒子を 0.5% 含有と平均粒径 $0.7\ \mu\text{m}$ のシリカ粒子を 0.03% 含有）を実施例 1 と同様にして、2 層積層未延伸フィルム（積層厚み比 A1 / B1 = 5 / 1）を作成した。

【0131】

この未延伸フィルムをロール式延伸機にて長手方向に 2 段で、速度 80000 % / 分、温度 160℃ で 3.1 倍延伸し、さらに、テンターを用いて、幅方向に速度 5000 % / 分、温度 160℃ で 4.2 倍延伸した。続いて、ロール式延伸機で長手方向に 1 段で、温度 185℃ で 1.05 倍に再延伸し、テンターを用いて幅方向に温度 240℃ で 1.75 倍再延伸した。定長下で温度 260℃ で 6 秒間熱処理後、幅方向に 2% の弛緩処理を行い、厚さ約 $4.2\ \mu\text{m}$ の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 $3.5\ \mu\text{m}$ 、B 層 $0.7\ \mu\text{m}$ であった。長手方向のヤング率は 7.9 GPa、幅方向のヤング率は 7.1 GPa であった。

【0132】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、ドロップアウトが少なく、電磁変換特性、走行耐久性など磁気記録媒体用ベースフィルムとして優れた特性を有していた。

【0133】

比較例 1

A 層ポリマーとして、PET と PEI のブレンドチップを用いる代わりに、実質的に粒子を含有しない PET チップを用いた以外は、実施例 1 と同様にして、A / B 2 層積層構成の未延伸フィルムを作成した。

【 0 1 3 4 】

次いで、実施例 1 と同様に、この未延伸フィルムをロール式延伸機にて長手方向に 2 段で、速度 6 0 0 0 0 % / 分、温度 1 0 5 ° C で 3 . 0 倍延伸し、さらに、テンターを用いて、幅方向に速度 3 0 0 0 % / 分、温度 1 0 0 ° C で 3 . 4 倍延伸した。続いて、ロール式延伸機で長手方向に 1 段で、温度 1 3 0 ° C で 1 . 4 倍に再延伸し、テンターを用いて幅方向に温度 1 5 0 ° C で 1 . 9 倍再延伸した。定長下で温度 2 1 0 ° C で 8 秒間熱処理後、幅方向に 2 % の弛緩処理を行い、厚さ約 6 μ m の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 5 . 5 μ m、B 層 0 . 5 μ m であった。長手方向のヤング率は 6 . 5 G P a、幅方向のヤング率は 5 . 4 G P a であった。

【 0 1 3 5 】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、磁気記録媒体用途のフィルムとして劣るものであった。

【 0 1 3 6 】

比較例 2

実施例 1 と全く同様に、2 層積層構成の未延伸フィルムを作成した。

【 0 1 3 7 】

次いで、この未延伸フィルムをロール式延伸機にて長手方向に 2 段で、速度 7 0 0 0 0 % / 分、温度 9 5 ° C で 3 . 5 倍延伸し、さらに、テンターを用いて、幅方向に速度 3 0 0 0 % / 分、温度 1 2 0 ° C で 3 . 0 倍延伸した。続いて、ロール式延伸機で長手方向に 1 段で、温度 1 3 0 ° C で 1 . 7 倍に再延伸し、テンターを用いて幅方向に温度 1 8 0 ° C で 1 . 2 倍再延伸した。定長下で温度 2 1 0 ° C で 8 秒間熱処理後、幅方向に 2 % の弛緩処理を行い、厚さ約 6 μ m の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 5 . 5 μ m、B 層 0 . 5 μ m であった。長手方向のヤング率は 6 . 8 G P a、幅方向のヤング率は 4 . 5 G P a であった。

【 0 1 3 8 】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、磁気記録媒体用途のフィルムとして劣るものであった。

【 0 1 3 9 】

比較例 3

実施例 1 と全く同じ原料を用い、ただし、A 層ポリマーの濾過方法を $3 \mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターののみを用いる方法に変更して、2 層積層構成の未延伸フィルムを作成した。その後の延伸と熱処理は実施例 1 と全く同様に行い、厚さ約 $6 \mu\text{m}$ の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 $5.5 \mu\text{m}$ 、B 層 $0.5 \mu\text{m}$ であった。長手方向のヤング率は 6 GPa 、幅方向のヤング率は 4.7 GPa であった。

【 0 1 4 0 】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、磁気記録媒体用途のフィルムとして劣るものであった。

【 0 1 4 1 】

比較例 4

B 層ポリマーとして平均粒径 $0.3 \mu\text{m}$ のジビニルベンゼン架橋粒子を 3 重量%と平均粒径 $1.2 \mu\text{m}$ の球状シリカ粒子を 0.1 重量%含有する PET/PEI のブレンドポリマー（重量比 90 : 10）を用いた以外は実施例 1 と同様にして、2 層積層構成の未延伸フィルムを作成した。その後の延伸と熱処理は実施例 1 と全く同様に行い、厚さ約 $6 \mu\text{m}$ の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 $5.5 \mu\text{m}$ 、B 層 $0.5 \mu\text{m}$ であった。長手方向のヤング率は 6 GPa 、幅方向のヤング率は 4.7 GPa であった。

【 0 1 4 2 】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、磁気記録媒体用途のフィルムとして劣るものであった。

【 0 1 4 3 】

比較例 5

A 層ポリマーとして、PET/PEI の混合ポリマー（重量比 90 : 10、平均粒径 $0.17 \mu\text{m}$ のジビニルベンゼン架橋粒子を 0.24 重量%と平均粒径 $0.75 \mu\text{m}$ の球状シリカ粒子を 0.01 重量%含有）を用い、積層を行わなかった以外は実施例 1 と同様にして、単層の未延伸フィルムを作成した。その後の延伸と

熱処理は実施例 1 と全く同様に行い、厚さ約 $6\ \mu\text{m}$ の積層ポリエステルフィルムを得た。各層のフィルム厚みは、A 層 $5.5\ \mu\text{m}$ 、B 層 $0.5\ \mu\text{m}$ であった。長手方向のヤング率は $6\ \text{GPa}$ 、幅方向のヤング率は $4.7\ \text{GPa}$ であった。

【0144】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、磁気記録媒体用途のフィルムとして劣るものであった。

【0145】

比較例 6

A 層ポリマーとして、PET/PEI のブレンドポリマー（重量比 60 : 40、粒子添加量は、実施例 1 と同様）を用いた。ただし、A 層ポリマーの濾過方法は、 $1.2\ \mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターは押出が不良となるため使用できなかったため、サンドフィルターおよび $3\ \mu\text{m}$ カットの繊維焼結ステンレス金属フィルターを用いる方法に変更し、2 層積層構成の未延伸フィルムを作成した。その後、長手方向に 2 段で、速度 $50000\ \%/分$ 、温度 180°C で 3.5 倍延伸し、さらに、テンターを用いて、幅方向に速度 $3500\ \%/分$ 、温度 180°C で 4.5 倍延伸した。定長下で温度 250°C で 8 秒間熱処理後、幅方向に 2 % の弛緩処理を行い、厚さ約 $6\ \mu\text{m}$ の積層ポリエステルフィルムを得た。（未延伸フィルムの延伸性が不良であったため、実施例 1 と同様の再縦、再横延伸を施す延伸方法は不可能であった。）各層のフィルム厚みは、A 層 $5.5\ \mu\text{m}$ 、B 層 $0.5\ \mu\text{m}$ であった。長手方向のヤング率は $4\ \text{GPa}$ 、幅方向のヤング率は $4.4\ \text{GPa}$ であった。

【0146】

この積層ポリエステルフィルムは、表 2 に示したとおり、磁気記録媒体用途のフィルムとして劣るものであった。

【0147】

【表 1】

(表 1)

	A 層 ポリマー	A 層中の粒子		B 層中の粒子		積層 構成	表面粗さ Ra (nm)			ボイドの 大きさ Dv/D	粗大突起数 (個/100cm ²)		A 層ポリマーの補外 ガラス転移温度 Tg(°C), ガラス転移温度 Tg
		粒子種/ 粒径(μm)/ 含有量(wt%)	粒子種/ 粒径(μm)/ 含有量(wt%)	粒子種/ 粒径(μm)/ 含有量(wt%)	粒子種/ 粒径(μm)/ 含有量(wt%)		B 層側 Ra (B)	反対側 Ra (NB)	差 Ra (B) - Ra (NB)		H 1	H 2	
実施例 1	PET/PEI (=90/10)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	9	6.5	2.5	1.9	30	2	98, 113
実施例 2	PET/PEI (=90/10)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	13	7.5	5.5	1.9	35	4	98, 115
実施例 3	PET/PEI (=85/15)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	9.1	7	2.1	2.3	45	3	102, 123
実施例 4	PEN/PEI (=90/10)	ジビニルモノマー/0.25/0.05 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.25/0.05 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.25/0.05 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.25/0.05 7μm/0.025/0.3	A/B	7.5	5.3	2.2	2.4	15	0	120, 146
比較例 1	PET	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	8.8	6.2	2.4	1.1	15	0	85, 106
比較例 2	PET/PEI (=90/10)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	11.5	9	2.5	4.5	25	4	98, 114
比較例 3	PET/PEI (=90/10)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	11	7.5	3.5	1.8	120	35	97, 113
比較例 4	PET/PEI (=90/10)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	25	10.5	14.5	1.8	33	2	98, 115
比較例 5	PET/PEI (=90/10)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A (単層)	9	8.9	0.1	2.1	70	9	97, 114
比較例 6	PET/PEI (=60/40)	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	ジビニルモノマー/0.17/0.06 7μm/0.025/0.3	A/B	15	10	5	8.2	90	6	145, 180

【0148】

【表 2】

(表 2)

	熱収縮率 (%) 長手方向 (80℃/100℃), 幅方向 (80℃/100℃)	荷重下での幅方 向の寸法変化率 (%)	電磁変換特性 S / N (dB)	ドロップ アウト (個)	トラック ずれ (μm)	総合評価
実施例 1	0.21/0.7 , -0.01/0	-0.32	+0.6 ◎	16 ○	0.44 ○	○
実施例 2	0.23/0.8 , -0.02/0.01	-0.31	+0.3 ○	12 ○	0.42 ○	○
実施例 3	0.17/0.6 , 0/0	-0.29	+0.4 ○	19 ○	0.30 ○	○
実施例 4	0.20/0.55 , -0.01/0	-0.34	+0.8 ◎	8 ○	0.38 ○	○
比較例 1	0.4 /1.5 , 0.04/0.12	-0.39	0 ○	15 ○	0.87 ×	×
比較例 2	0.27/0.85 , 0/0	-0.33	-0.7 ×	45 ×	0.48 ○	×
比較例 3	0.22/0.7 , -0.04/0.02	-0.31	+0.1 ○	60 ×	0.47 ○	×
比較例 4	0.21/0.75 , -0.01/0	-0.31	-0.1 ○	43 ×	0.45 ○	×
比較例 5	0.22/0.7 , -0.02/0	-0.32	-0.9 ×	34 ×	0.45 ○	×
比較例 6	0.11/0.23 , 0/0	-0.22	-2.5 ×	89 ×	0.21 ○	×

【0149】

【発明の効果】

本発明によれば、ポリエステルにポリイミドを含有させ、良好な寸法安定性を有するフィルムの表裏の表面粗さとフィルム中の粒子周りに形成されるボイドの大きさと形状を規定することにより、特に磁気記録媒体用ベースフィルムとして使

用したときにトラックずれやドロップアウトが少なく良好な電磁変換特性を示す
高密度磁気記録テープを製造でき、磁気記録媒体用ベースフィルム用として好適
な 2 軸配向ポリエステルフィルムとすることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 フィルム表面に緻密な突起を形成して走行性や耐削れ性などの品質向上を図る。特に、磁気記録媒体用のベースフィルムとして使用したときにトラックずれやドロップアウトが少なく良好な電磁変換特性を示す磁気記録媒体を製造できる、高品質のポリエステルフィルムを提供する。

【解決手段】 ポリエステルとポリイミドからなる基層部（A層）の少なくとも一方に積層部（B層）が積層されてなる、2層以上のフィルム層を有する積層ポリエステルフィルムであって、B層側の表面粗さが3～15 nm、B層と反対側の表面粗さが0.5～10 nm、表裏のフィルム表面の表面粗さの差が1～7 nm、B層と反対面側のフィルム表面の粗大突起数H1が0～100個/100 cm²、粗大突起数H2が0～10個/100 cm²、および、A層中の粒子の実体平均粒径D_vと粒径Dとの比D_v/Dが1～3である磁気記録媒体用ポリエステルフィルムである。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003159]

1. 変更年月日 1990年 8月29日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号
氏 名 東レ株式会社